



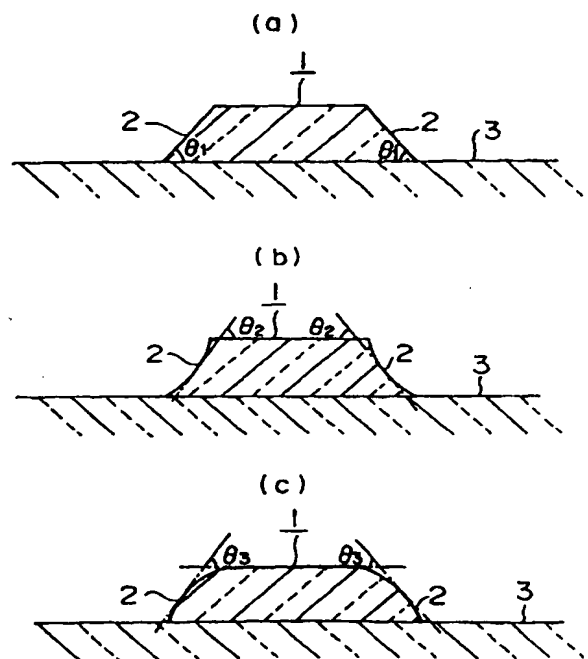
<p>(51) 国際特許分類6 H05B 33/26</p>	<p>A1</p>	<p>(11) 国際公開番号 WO97/46054</p> <p>(43) 国際公開日 1997年12月4日(04.12.97)</p>
<p>(21) 国際出願番号 PCT/JP97/01826</p> <p>(22) 国際出願日 1997年5月29日(29.05.97)</p> <p>(30) 優先権データ 特願平8/134541 1996年5月29日(29.05.96) JP</p> <p>(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 出光興産株式会社(IDEMITSU KOSAN CO., LTD.)(JP/JP) 〒100 東京都千代田区丸の内三丁目1番1号 Tokyo, (JP)</p> <p>(72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ) 細川地潮(HOSOKAWA, Chishio)(JP/JP) 松浦正英(MATSUURA, Masahide)(JP/JP) 東海林弘(TOKAILIN, Hiroshi)(JP/JP) 〒299-02 千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 Chiba, (JP)</p> <p>(74) 代理人 弁理士 中村静男、外(NAKAMURA, Shizuo et al.) 〒110 東京都台東区東上野1丁目25番12号 熊切ビル2階 Tokyo, (JP)</p>		<p>(81) 指定国 JP, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).</p> <p>添付公開書類 国際調査報告書</p>

(54) Title: ORGANIC EL DEVICE

(54) 発明の名称 有機EL素子

(57) Abstract

By using singly an amorphous conductive oxide such as amorphous IN-Zn-O oxide or amorphous ITO, or using a two- or three-layer body including an amorphous conductive oxide layer and a metal thin film layer, a transparent electrode which has tapered side faces and the uppermost layer of which is made of the amorphous conductive oxide is formed on a substrate. An organic single-layer or multilayer portion containing at least an organic luminescent material is formed on the transparent electrode. A counter electrode is provided on the organic single-layer or multilayer portion. When necessary, a flattening layer is provided adjacent to the side face of the transparent electrode for making gentle the steepness of the level difference between the transparent electrode and the surface of the substrate. An organic EL display panel is produced by using such an organic EL device.



(57) 要約

In-Zn-O系非晶質酸化物や非晶質ITO等の非晶質導電性酸化物を単独で用いて、または、非晶質導電性酸化物と少なくとも金属薄膜とによって構成された2～3層構造の積層物を用いて、側面がテーパ状を呈し、かつ、前記の非晶質導電性酸化物からなる層が最上層となっている透明電極を基板上に形成し、この透明電極上に少なくとも有機発光材料を含有している有機単層部または有機多層部を形成し、さらに、前記の有機単層部上または有機多層部上に対向電極を形成することによって有機EL素子を得る。必要に応じて、透明電極の側面に隣接して当該透明電極と前記の基板の表面との間の段差を緩和するための平坦化層を設ける。また、前記の有機EL素子を用いて有機EL表示パネルを形成する。

参考情報

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に記載されたPCT加盟国を特定するために使用されるコード

AL	アルバニア	ES	スペイン	LR	リベリア	SG	シンガポール
AM	アルメニア	FI	フィンランド	LS	レソト	SI	スロヴェニア共和国
AT	オーストリア	FR	フランス	LT	リトアニア	SK	スロヴァキア共和国
AU	オーストラリア	GA	ガボン	LU	ルクセンブルグ	SL	シエラレオネ
AZ	アゼルバイジャン	GB	英国	LV	ラトヴィア	SN	セネガル
BA	ボスニア・エルツェゴビナ	GE	グルジア	MC	モナコ	SZ	スワジランド
BB	バルバドス	GH	ガーナ	MD	モルドヴァ共和国	TD	チャド
BE	ベルギー	GM	ガンビア	MG	マダガスカル	TG	トーゴ
BG	ブルガリア	GN	ギニア	MK	マケドニア共和国	TJ	タジキスタン
BJ	ベナン	GR	ギリシャ		ラヴィア共和国	TM	トルクメニスタン
BK	ブラジル	HD	ハンガリー	ML	マリ	TR	トルコ
BY	ベラルーシ	IE	インドネシア	MN	モンゴル	TT	トリニダード・トバゴ
CA	カナダ	IL	イスラエル	MR	モリタニア	UA	ウクライナ
CF	中央アフリカ共和国	IS	アイスランド	MW	モザンビーク	UG	ウガンダ
CG	コンゴ	IT	イタリア	MX	メキシコ	US	米国
CH	スイス			NE	ニジェール	UZ	ウズベキスタン
CI	コート・ジボアール	JP	日本	NL	オランダ	VN	ヴェトナム
CN	中国	KE	ケニア	NO	ノルウェー	YU	ユーゴスラビア
CU	キューバ	KG	キルギスタン	NZ	ニュージーランド	ZW	ジンバブエ
CZ	チェコ共和国	KP	朝鮮民主主義人民共和国	PL	ポーランド		
DE	ドイツ	KR	大韓民国	PT	ポルトガル		
DK	デンマーク	KZ	カザフスタン	RO	ルーマニア		
EE	エストニア	LC	セントルシア	RU	ロシア連邦		
		LI	リヒテンシュタイン	SD	スーダン		
		LK	スリランカ	SE	スウェーデン		

明 細 書

有機EL素子

技 術 分 野

本発明は、有機エレクトロルミネッセンス素子（以下、エレクトロルミネッセンスを「EL」と略記する。）および有機EL素子を画素とする有機EL表示パネルに関する。

背 景 技 術

EL素子は自己発光素子であることから視認性が高く、また、完全固体素子であることから耐衝撃性に優れている。このような特徴を有していることから、現在では、発光材料として無機化合物を用いた種々の無機EL素子や、発光材料として有機化合物（以下、この化合物を「有機発光材料」という。）を用いた種々の有機EL素子が提案されており、かつ実用化が試みられている。

なかでも有機EL素子は、無機EL素子に比べて印加電圧を大幅に低下させることができるため、材料の開発・改良を通して、より高性能の有機EL素子を得るための研究が活発に進められている。この有機EL素子については、面光源としての利用も進められているが、いろいろな発光色の素子が開発されていることから、表示装置の画素としての利用も進められている。有機EL素子を画素として用いた表示装置では、有機EL素子からなる画素を同一平面上に二次元配列することによってパネル（有機EL表示パネル）を形成し、当該有機EL表示パネルを構成している有機EL素子（画素）を独立に駆動させることで所望の表示を行う。

有機EL素子は、通常、基板上に形成されており、基板側を光取出し面とするタイプの有機EL素子の基本構成は、基板上に陽極（透明電極）、発光層、陰極が順次積層された構成である。そして、素子の性能を向上させるために、陽極と発光層の間に正孔注入層を設けたり、陰極と発光層との間に電子注入層を設けたりする場合もある。

上記の透明電極（陽極）の材料としては、結晶質ITO、ZnO:Al等、面抵抗が概ね $15\ \Omega/\square$ 以上の透明電極材料が利用されている。これらの材料からなる透明電極を用いて例えばX-Yマトリックス型の有機EL表示パネルを得るにあたっては、電圧降下による表示性能の低下、消費電力の増大およびRC時定数の増大等を抑制するうえから、当該透明電極の膜厚を概ね200nm以上と比較的厚くして透明電極ラインの電気抵抗を10K Ω 程度以下にする必要がある。

しかしながら、上記のような厚肉の透明電極（透明電極ライン）を使用した場合には、(a) 当該透明電極のエッジ段差（透明電極の上面と基板表面との段差）により素子が短絡する、(b) 当該透明電極上に積層されている有機単層部もしくは有機多層部または当該有機単層部上もしくは有機多層部上に積層されている対向電極が断線（以下、この断線を「段差切れ」という。）して画像に点欠陥や線欠陥が起きる、等の問題が発生する。

また、上述した透明電極材料からなる従来の透明電極においては、その膜厚を概ね200nm以上にすると表面の平坦性が損なわれ、このような透明電極上に有機単層部もしくは有機多層部および対向電極を積層して有機EL素子を得ると、(c) 局所的凹凸が大きくなることからその駆動時に局所的に高電圧が生じ、その結果として輝度ムラが生じ、ひいては素子の劣化が促進されて、発光安定性が低下する、(d) 有機単層部または有機多層部を形成している有機化合物の結晶化が促進され、その結果として輝度ムラおよび発光性の低下が生じる、等の問題が発生する。

厚肉の透明電極上に他の層を積層した場合に当該他の層に段差切れが生じることを防止する方法としては、無機EL素子における方法ではあるが、ガラス基板上にストライプ状の絶縁膜またはガラス突起部を複数形成し、これらの絶縁膜またはガラス突起部の間に当該絶縁膜またはガラス突起部と略同じ厚さの透明電極を形成する方法が知られている（特開昭61-176011号公報参照）。

一方、有機EL素子において有機単層部または有機多層部を形成している有機化合物に結晶化が生じることを防止する方法としては、一旦形成した透明導電膜の表面を研磨してその平坦度（十点平均粗さ）を発光層（有機単層部または有機多層部）の膜厚の $1/10 \sim 1/100$ にした後、所定形状の透明電極にバター

ニングする方法が知られているが（特開平４－８７１８７号公報参照）、この方法では、透明電極の作製、ひいては有機ＥＬ素子の作製が煩雑になる。

前述した(a)～(d)の各問題が発生することは、特開平２－２５３５９３号公報に記載されているような３層構造の薄肉の透明電極、すなわち、基板側からみたときの積層順が透明導電層（金属酸化物層）、金属薄膜、透明導電層（金属酸化物層）である薄肉の透明電極を利用することにより、ある程度抑制することができる。同様の層構成を有する透明電極は、欧州特許公開公報第７３６９１３号の第１０欄第２５～４４行にも記載されている。

また、特開平６－５３６９号公報に記載されているような透明電極（陽極）、すなわち、基板側からみたときに透明導電層からなる第１陽極部と当該第１陽極部より仕事関数の高い金属薄膜からなる第２陽極部とが順次積層されている２層構造の透明電極のうちで第１陽極部が薄肉のものも、前述した(a)～(d)の各問題の発生をある程度抑制することができる。

しかしながら、複数層構造を有する上記薄肉の透明電極を用いたとしても、有機ＥＬ表示パネルのように多数の有機ＥＬ素子を形成することが必要な場合においては、前述した(a)～(d)の各問題、特に(a)および(b)の各問題が発生しやすい。

発明の開示

本発明の第１の目的は、電圧降下による表示性能の低下、消費電力の増大およびＲＣ時定数の増大をそれぞれ抑制しつつ表示品質の高い有機ＥＬ表示パネルを容易に作製することが可能な有機ＥＬ素子を提供することにある。

また、本発明の第２の目的は、電圧降下による表示性能の低下、消費電力の増大およびＲＣ時定数の増大をそれぞれ抑制しつつ高い表示品質を得ることが可能で、かつ、その作製が容易な有機ＥＬ表示パネルを提供することにある。

上記第１の目的を達成する本発明の有機ＥＬ素子は、基板上に透明電極が形成され、この透明電極上に少なくとも有機発光材料を含有している有機単層部または有機多層部が形成され、この有機単層部上または有機多層部上に対向電極が形成されている有機ＥＬ素子であり、前記の透明電極は、非晶質導電性酸化物層を

有する面抵抗 $12 \Omega/\square$ 以下、表面平坦度 20 nm 以下のものであるとともに側面がテーパ状を呈するものであり、前記の非晶質導電性酸化物層上に前記の有機単層部または有機多層部が形成されていることを特徴とするものである（以下、この有機EL素子を「有機EL素子I」という。）。

また、上記第1の目的を達成する本発明の他の有機EL素子は、基板上に透明電極が形成され、この透明電極上に少なくとも有機発光材料を含有している有機単層部または有機多層部が形成され、この有機単層部上または有機多層部上に対向電極が形成されている有機EL素子であり、前記の透明電極は非晶質導電性酸化物層を有する面抵抗 $12 \Omega/\square$ 以下、表面平坦度 20 nm 以下のものであり、前記の非晶質導電性酸化物層上に前記の有機単層部または有機多層部が形成されており、かつ、この透明電極の側面に隣接して該透明電極と前記の基板の表面との間の段差を緩和するための平坦化層が設けられていることを特徴とするものである（以下、この有機EL素子を「有機EL素子II」という。）。

一方、上記第2の目的を達成する本発明の有機EL表示パネルは、上述した本発明の有機EL素子Iまたは有機EL素子IIからなる複数の画素が同一平面上に二次元配列されていることを特徴とするものである。

図面の簡単な説明

第1図は本発明でいう「透明電極の側面と基板表面とがなす角」を説明するための断面図であり、第2図は本発明でいう「平坦化層」を説明するための断面図である。

発明を実施するための最良の形態

以下、本発明の実施の形態について詳細に説明する。

まず、本発明の有機EL素子Iについて説明すると、この有機EL素子Iは、前述したように基板上に透明電極が形成され、この透明電極上に少なくとも有機発光材料を含有している有機単層部または有機多層部が形成され、この有機単層部上または有機多層部上に対向電極が形成されている有機EL素子である。このような素子構成自体は、基板側を光取出し面とするタイプの従来の有機EL素子

と同じである。

本発明の有機EL素子Iにおいては、上記の透明電極が非晶質導電性酸化物層を有する面抵抗 $12\Omega/\square$ 以下、表面平坦度 20nm 以下のものであると共に側面がテーバ状を呈するものであり、前記の非晶質導電性酸化物層上に前記の有機単層部または有機多層部が形成されている。

上記の非晶質導電性酸化物層としては、インジウム(In)，亜鉛(Zn)および酸素(O)を構成元素とし、インジウム(In)の原子比 $\text{In}/(\text{In}+\text{Zn})$ が $0.5\sim 0.9$ である非晶質酸化物からなるもの(以下、この非晶質導電性酸化物層を「In-Zn-O系非晶質導電性酸化物層」という。)や、非晶質ITO層、または、前記のIn-Zn-O系非晶質酸化物にGa, Al, Sn等の第3金属を更に添加した非晶質酸化物(特開平7-235219号公報参照)からなるもの等が好ましい。

上記のIn-Zn-O系非晶質導電性酸化物層は、所定のスパッタリングターゲットを用いたスパッタリング法等によって容易に形成することができる。また、非晶質ITO層は、基板温度を 200°C 以下にする以外は結晶質ITO膜を製膜する場合と同様にして、各種のスパッタリング法(DCスパッタリング, RFスパッタリング, DCマグネトロンスパッタリング, RFマグネトロンスパッタリング, ECRプラズマスパッタリング, イオンビームスパッタリング等)やイオンプレーティング法等によって製膜することができる。

本発明の有機EL素子Iを構成している透明電極は、上述した非晶質導電性酸化物層のみからなる単層構造のものであってもよいし、上記の非晶質導電性酸化物層の他に少なくとも金属薄膜を有する2～3層構造のものであってもよいが、いずれの場合でも、その面抵抗は $12\Omega/\square$ 以下とすることが好ましい。面抵抗が $12\Omega/\square$ を超える透明電極を備えた有機EL素子を用いて有機EL表示パネルを作製すると、電圧降下による表示性能の低下、消費電力の増大およびRC時定数の増大をまねくことになる。

透明電極の層構造を上記の非晶質導電性酸化物層のみからなる単層構造とする場合、当該単層構造の透明電極(非晶質導電性酸化物層)の面抵抗は、その比抵抗に応じて膜厚を適宜調整することにより、容易に $12\Omega/\square$ 以下とすることが

できる。ただし、面抵抗が $12\ \Omega/\square$ 以下であってもその膜厚があまりに薄いと膜の連続性が得られずに島状になることがあるので、注意が必要である。また、その膜厚があまりに厚いと光透過性が低下する。このため、一層の非晶質導電性酸化物層からなる透明電極の膜厚は概ね $100\sim500\text{ nm}$ とすることが好ましく、 $200\sim500\text{ nm}$ とすることがより好ましい。

一方、透明電極の層構造を非晶質導電性酸化物層と金属薄膜との2層構造とする場合には、面抵抗が $12\ \Omega/\square$ 以下の透明電極を得るうえから、前述した非晶質導電性酸化物層の膜厚を $50\sim3000$ オングストローム、好ましくは $500\sim1000$ オングストロームにすると共に、抵抗率が $1\times10^{-5}\ \Omega\text{ cm}$ 以下の金属、例えばAg, Au, Al, Cu, Ni, Pt等によって可視光域での光透過率が $60\sim90\%$ 程度の金属薄膜を形成することが好ましい。金属薄膜の膜厚が $10\sim100$ オングストローム程度であれば、可視光域での光透過率が概ね 70% 以上の金属薄膜を得ることができるが、電気抵抗が小さく光透過率が高い金属薄膜を得るうえからは、その膜厚を $50\sim100$ オングストローム程度にすることがより好ましい。なお、金属薄膜は単層構造のものであってもよいし、複数層構造のものであってもよい。

そして、透明電極の層構造を非晶質導電性酸化物層の他に少なくとも金属薄膜を有する3層構造とする場合には、2層の透明導電層と当該2層の透明導電層によって挟持されている1層の金属薄膜とによって当該透明電極を形成し、かつ、前記2層の透明導電層のうちの少なくとも一方を前述した非晶質導電性酸化物層とすることが好ましい。この場合における非晶質導電性酸化物層の膜厚ならびに金属薄膜の材質および膜厚は、前述した2層構造の透明電極におけると同様である。また、2層の透明導電層のうちの一方を前述した非晶質導電性酸化物層以外の透明導電層とする場合には、当該透明導電層を結晶質ITO, ZnO:Al, SnO₂:Sb等によって形成し、かつ、その膜厚を $50\sim2000$ オングストローム程度とすることが好ましく、膜厚については $500\sim1000$ オングストロームとすることがより好ましい。

なお、透明電極を前記の2層構造とする場合および上記の3層構造とする場合のいずれにおても、有機EL素子を構成する有機単層部または有機多層部が前述

した非晶質導電性酸化物層（透明電極を構成しているもの）上に形成されることになるように、当該非晶質導電性酸化物層が透明電極おける最上層となるようにその層構造を選択する。

前述した非晶質導電性酸化物層の表面の平坦性は極めて高く、欠陥も少ないので、当該非晶質導電性酸化物層は基板上に製膜した時点で「表面平坦度 20 nm 以下」という条件を容易に満たす。また、透明電極の層構造を前述の 2～3 層構造とした場合には金属薄膜上に前述した非晶質導電性酸化物層が製膜されるわけであるが、この場合でも、当該非晶質導電性酸化物層は「表面平坦度 20 nm 以下」という条件を容易に満たす。したがって、本発明の有機 EL 素子 I における透明電極は、表面平坦度が 20 nm 以下のものを容易に得ることができる透明電極である。

ここで、本発明でいう「表面平坦度」とは表面粗さの二乗平均値を意味し、この「表面平坦度」は、走査型トンネル顕微鏡（STM）、走査型原子間力顕微鏡（AFM）、触針膜厚計等を用いて求めることができる。

表面平坦度が 20 nm を超える透明電極を用いた場合には、局所的凹凸が大きくなる結果、発光面に欠陥が無く均一発光性に優れた有機 EL 素子を得ることが困難になる。また、表面平坦度が 20 nm 以下の透明電極を用いることは、素子の短絡を防ぐという観点からも重要である。

本発明の有機 EL 素子 I においては、上記の透明電極の側面がテーパ状を呈している。ここで、本発明でいう「透明電極の側面がテーパ状を呈している」とは、前述した単層構造の透明電極については、その上面の幅が下面の幅より狭く、側面が平面状の傾斜面または外側もしくは内側に湾曲した曲面になっていることを意味し、前述した 2～3 層構造の透明電極については、その上面の幅が下面の幅より狭く、少なくとも当該透明電極を構成している非晶質導電性酸化物層の側面が平面状の傾斜面または外側もしくは内側に湾曲した曲面になっていることを意味する。側面がテーパ状を呈する透明電極を用いることにより、透明電極上に積層される有機単層部もしくは有機多層部または当該有機単層部上もしくは当該有機多層部上に積層される対向電極に段差切れが生じることを抑制することが可能になる。

側面がテーパ状を呈し、かつ、この側面が平面状の傾斜面になっている透明電極を用いる場合、上記の段差切れが生じることを抑制するうえからは、第1図(a)に示すように透明電極1の側面2と基板表面3とがなす角 θ_1 を 60° 以下とすることが好ましく、 40° 以下とすることが特に好ましい。

また、側面がテーパ状を呈し、かつ、この側面が内側に湾曲した曲面になっている透明電極を用いる場合も、上記の段差切れが生じることを抑制するうえからは、第1図(b)に示すように、透明電極1の側面2についての接線のうちで透明電極1の膜厚の $1/2$ の高さの地点における接線(図中、一点鎖線で示す。)と透明電極1の上面とがなす角 θ_2 を 60° 以下とすることが好ましく、 40° 以下とすることが特に好ましい。

そして、側面がテーパ状を呈し、かつ、この側面が外側に湾曲した曲面になっている透明電極を用いる場合も、上記の段差切れが生じることを抑制するうえからは、第1図(c)に示すように、透明電極1の側面2についての接線のうちで透明電極1の膜厚の $1/2$ の高さの地点における接線(図中、一点鎖線で示す。)と透明電極1の上面とがなす角 θ_3 を 60° 以下とすることが好ましく、 40° 以下とすることが特に好ましい。

なお、本発明においては、前記の θ_2 および θ_3 も「透明電極の側面と基板表面とがなす角」に含まれるものとする。

側面がテーパ状を呈している透明電極は、当該透明電極の材料となる透明導電膜を基板上に一旦製膜し、この透明導電膜を所定の方法によってウエットエッチングまたはドライエッチングすることにより得ることができる。

透明導電膜をウエットエッチングすることによって側面がテーパ状を呈している透明電極を形成する場合には、ウエットエッチングの対象となる膜の種類に応じて、例えば下記(A)～(D)の要領でエッチングを行う。

(A) In-Zn-O系非晶質酸化物(Ga, Al, Sn等の第3金属を更に添加したものを含む。以下同じ。)層からなる単層構造の透明導電膜をウエットエッチングする場合

透明導電膜上にフォトリソ膜を形成し、所定の露光用原版を用いての露光および所定の現像液を用いての現像を行って、透明電極を形成しようとする箇所

の透明導電膜上にレジストパターン形成する。次に、10～15% HBr 水溶液、塩酸と硝酸と水との $\text{HCl} : \text{HNO}_3 : \text{H}_2\text{O} = 2 : 1 : 1$ (重量比) 溶液等をエッチャントとして用いてウェットエッチングを行う。この後、上記のレジストパターンを所定の剥離液を用いて剥離することにより、側面がテーパ状を呈している透明電極を得る。

エッチャントとして10～15% HBr 水溶液を用いた場合には、側面と基板表面とがなす角が30° 前後の透明電極を得ることができ、塩酸と硝酸と水との $\text{HCl} : \text{HNO}_3 : \text{H}_2\text{O} = 2 : 1 : 1$ (重量比) 溶液を用いた場合には、側面と基板表面とがなす角が40° 前後の透明電極を得ることができる。

なお、上記のウェットエッチングでは残渣も残らず、極めて良好にエッチングすることができる。ウェットエッチングによって仮に残渣が生じた場合、当該残渣は突起部を形成することになるので、除去すべきである。

(B) 上記(A) In-Zn-O系非晶質導電性酸化物層の他に少なくとも金属薄膜を有する2～3層構造の透明導電膜をウェットエッチングする場合

上記(A)と同様にしてウェットエッチングすることができるが、金属薄膜が難エッチング性のものである場合、例えばPt, Au等からなるものである場合には、必要に応じて前記のエッチャントに当該難エッチング性の金属薄膜を溶解させ得る成分を添加することにより、所望のウェットエッチングを行うことができる。

(C) 非晶質ITO層からなる単層構造の透明導電膜をウェットエッチングする場合

エッチャントとして15～30% HBr 水溶液または塩酸と硝酸と水との $\text{HCl} : \text{HNO}_3 : \text{H}_2\text{O} = 2 : 1 : 1 \sim 3 : 2 : 1$ (重量比) 溶液を用いる以外は上記(A)と同様にしてウェットエッチングを行う。

エッチャントとして15～30% HBr 水溶液を用いた場合には、側面と基板表面とがなす角が30～50° の透明電極を得ることができ、塩酸と硝酸と水との $\text{HCl} : \text{HNO}_3 : \text{H}_2\text{O} = 2 : 1 : 1 \sim 3 : 2 : 1$ (重量比) 溶液を用いた場合には、側面と基板表面とがなす角が20～60° の透明電極を得ることができる。

(D) 非晶質ITO層の他に少なくとも金属薄膜を有する2～3層構造の透明導電膜をウェットエッチングする場合

上記(C)と同様にしてウェットエッチングすることができるが、金属薄膜が難エッチング性のものである場合、例えばPt, Au等からなるものである場合には、必要に応じて前記のエッチャントに当該難エッチング性の金属薄膜を溶解させ得る成分を添加することにより、所望のウェットエッチングを行うことができる。

一方、透明導電膜をドライエッチングすることによって側面がテーパ状を呈している透明電極を形成する場合には、ウェットエッチングの場合と同様にして透明導電膜上にレジストパターンを形成した後、このレジストパターンを熱硬化させること等によってその段差部分(側面)をテーパ状にする。次いで、前記の透明導電膜が非晶質導電性酸化物層からなる単層構造のものである場合には、 CH_4/HCl 混合ガスまたは HI/Ar 混合ガスをエッチングガスとして用いて、当該エッチングガスのプラズマまたはイオンによりエッチング加工を行う。一方、前記の透明導電膜が非晶質導電性酸化物層の他に少なくとも金属薄膜を有する2～3層構造のものである場合には、その膜厚にもよるが、前記のエッチングガス(混合ガス)に更に CF_4 ガス等のフッ化炭化水素ガスを必要に応じて加えたものをエッチングガスとして用いてエッチング加工を行う。

この後、上記のレジストパターンを所定の剥離液を用いて剥離することにより、側面がテーパ状を呈している透明電極が得られる。

エッチングガスとして CH_4/HCl 混合ガスを用いた場合には、側面と基板表面とがなす角が $30\sim60^\circ$ 前後の透明電極を得ることができ、 HI/Ar 混合ガスを用いた場合には、側面と基板表面とがなす角が 50° 前後の透明電極を得ることができる。

上述した透明電極を有している本発明の有機EL素子Iにおいては、透明電極の面抵抗が $12\Omega/\square$ 以下と小さいので、当該有機EL素子Iを用いることにより、電圧降下による表示性能の低下、消費電力の増大およびRC時定数の増大をそれぞれ抑制しつつ有機EL表示パネルを得ることが可能になる。

また、前記の透明電極の表面平坦度は、当該透明電極の材料となる透明導電膜

を製膜した時点で既に20nm以下であるので、所望の表面平坦度を有する透明電極を得るために研磨等の処理を施す必要が無く、その作製は容易である。そして、この透明電極を有している本発明の有機EL素子Iにおいては局所的凹凸が小さく、有機単層部もしくは有機多層部を形成している有機化合物の結晶化が促進されるということも少ないので、輝度ムラ、発光安定性の低下および発光性の低下がそれぞれ生じにくい。

さらに、前記の透明電極の側面が前述のようにテーパ状を呈している本発明の有機EL素子Iにおいては、透明電極の側面と基板表面との段差が透明電極の上面から下面にかけて徐々に小さくなっているので、当該透明電極上に形成されている有機単層部または有機多層部に段差切れが生じにくい。同様に、前記の有機単層部上または有機多層部上に形成されている対向電極にも段差切れが生じにくい。

これらの結果として、本発明の有機EL素子Iを用いて有機EL表示パネルを作製した場合には、表示品質の高い有機EL表示パネルを容易に得ることが可能になる。

上述した特性を有する本発明の有機EL素子Iは、有機EL表示パネルの画素として好適である他、面光源としても好適である。

本発明の有機EL素子Iを構成する基板、有機単層部または有機多層部および対向電極については、後述する。

次に、本発明の有機EL素子IIについて説明する。

本発明の有機EL素子IIは、前述したように、基板上に透明電極が形成され、この透明電極上に少なくとも有機発光材料を含有している有機単層部または有機多層部が形成され、この有機単層部上または有機多層部上に対向電極が形成されている有機EL素子である。このような素子構成自体は、前述した本発明の有機EL素子Iと同様に、基板側を光取出し面とするタイプの従来の有機EL素子と同じである。

本発明の有機EL素子IIにおける最大の特徴は、上記の透明電極が非晶質導電性酸化物層を有する面抵抗 $12\Omega/\square$ 以下、表面平坦度20nm以下のものであり、前記の非晶質導電性酸化物層上に前記の有機単層部または有機多層部が形成

されており、かつ、この透明電極の側面に隣接して、当該透明電極と前記の基板の表面との間の段差を緩和するための平坦化層が設けられていることにある。

上記の透明電極としては、本発明の有機EL素子Iの説明の中で例示した層構造を有するものが好ましい。また、当該透明電極の側面は、垂直面や内側に湾曲した曲面等、テーパー状を呈していないものであってもよいし、本発明の有機EL素子Iにおけると同様にテーパー状を呈しているものであってもよい。

この透明電極の面抵抗を前述のように $12\ \Omega/\square$ 以下、表面平坦度を $20\ \text{nm}$ 以下にする理由は、前述した本発明の有機EL素子Iにおける理由と同じであり、面抵抗についての好ましい範囲および表面平坦度についての好ましい範囲もまた、前述した本発明の有機EL素子Iにおけると同じである。

本発明の有機EL素子IIにおいては、前述した本発明の有機EL素子Iと同様に、当該有機EL素子IIを構成する有機単層部または有機多層部が上記の非晶質導電性酸化物層上に形成されている。そして、上記の非晶質導電性酸化物層を有する透明電極の側面に隣接して、当該透明電極と基板との間の段差を緩和するための平坦化層が設けられている。

第2図(a)に示すように、この平坦化層10は透明電極11とともに平坦面12を形成するものであることが好ましいが、平坦化層と透明電極とは必ずしも平坦面を形成している必要はなく、当該平坦化層は、透明電極の上面と基板表面との間の段差を概ね $150\ \text{nm}$ 以下にすることができただけの膜厚を有する平坦な層であってもよい。さらには、第2図(b)に示すように、平坦化層20は透明電極21の側面に隣接してテーパー面22を形成するものであってもよい。そして、第2図(c)に示すように、平坦化層30によって形成されるテーパー面31は、必ずしも基板表面に達していなくてもよい。

なお、第2図(a)，(b)，(c)のいずれにおいても、符号15は基板を示している。また、平坦化層によって形成される上記の「テーパー面22」は、平面状の傾斜面、外側に湾曲した曲面、内側に湾曲した曲面のいずれであってもよいが、当該テーパー面22が基板表面に達している場合には、前述した本発明の有機EL素子Iを構成している透明電極の側面と同様の形状の面とする。

上述した平坦化層は、酸化ケイ素、フッ素添加酸化ケイ素、酸化アルミニウム

、酸化タンタル、酸化クロム、酸化チタン、酸化イットルビウム等の酸化物や、窒化ケイ素等の窒化物、あるいはポリイミド、ポリオレフィン、ポリアクリレート、ポリキノリン、フッ素系ポリマー、ポリカーボネート等のポリマー等の電気絶縁性物質によって形成される。平坦化層の材料としては、電気絶縁性の酸化物が特に好ましい。平坦化層は、例えば下記(i)～(iii)のようにして形成することができる。

(i) 透明電極の材料となる透明導電膜を基板上に形成し、この透明導電膜上にフォトリソ膜を形成した後、所定の露光用原版を用いての露光および所定の現像液を用いての現像を行って、透明電極を形成しようとする箇所の透明導電膜上にレジストパターン形成する。次に、所定のエッチャントまたはエッチングガスを用いて、透明導電膜のうちでその上にレジストパターンが形成されていない箇所をエッチングし、これによって透明電極（その上にレジストパターンが形成されている状態のもの）を得る。

次いで、レジストパターンを剥離する前に、当該レジストパターンが形成されている側（透明導電膜をエッチングした側）の基板表面上に所望の平坦化層材料によって所定膜厚の膜を形成する。このとき、当該膜は、平坦化層材料の種類に応じて、真空蒸着法、スパッタリング法、CVD法、スピンコート法、バーコート法、塗布法等の方法によって形成する。この膜は基板表面（透明電極が形成されていない箇所）上およびレジストパターン上に形成され、前記の基板表面上に形成された膜が平坦化層となる。

この後、上記のレジストパターンを所定の剥離液を用いて剥離して、目的とする平坦化層を得る。

テーパ面を有する平坦化層を形成しようとする場合には、所定形状の透明電極を形成した後、この透明電極の側面にのみ所定の幅の電気絶縁性ポリマー層を形成し、当該電気絶縁性ポリマー層を熱硬化させることによって目的とする平坦化層を形成することができる。電気絶縁性ポリマー層の熱硬化に伴って当該電気絶縁性ポリマー層が収縮し、その結果として、テーパ面を有する平坦化層が得られる。

(ii) 基板表面上に所望の平坦化層材料によって所定膜厚の膜を形成し、この膜上に

フォトリソ膜を形成した後、所定の露光用原版を用いての露光および所定の現像液を用いての現像を行って、平坦化層を形成しようとする箇所の膜上にレジストパターン形成する。次に、所定のエッチャントまたはエッチングガスを用いて、前記の膜のうちでその上にレジストパターンが形成されていない箇所をエッチングし、これによって平坦化層（その上にレジストパターンが形成されている状態のもの）を得る。

次いで、レジストパターンを剥離する前に、当該レジストパターンが形成されている側（前記の膜をエッチングした側）の基板表面上に所望の導電材料によって所定膜厚の透明導電膜を形成する。このとき、当該透明導電膜は基板表面（平坦化層が形成されていない箇所）上およびレジストパターン上に形成され、前記の基板表面上に形成された透明導電膜が透明電極となる。

この後、上記のレジストパターンを所定の剥離液を用いて剥離して、目的とする平坦化層を得る。

(iii) 前記(i)と同様にして透明電極（その上にレジストパターンが形成されている状態のもの）を得、この透明電極上のレジストパターンを剥離する前に、当該レジストパターンが形成されている側（透明導電膜をエッチングした側）の基板表面上に、Al, Ta, Cr, Ti等、所望の導電性金属によって所定膜厚の導電性金属膜を製膜する。この導電性金属膜は、真空蒸着法、スパッタリング法等の方法によって、基板表面（透明電極が形成されていない箇所）上およびレジストパターン上に形成される。

次に、上記の導電性金属膜を酒石酸アンモニウム、クエン酸、クエン酸塩、リン酸、リン酸塩等を用いて調製した中性電解質溶液中で陽極酸化する。陽極酸化にあたっては、上記の導電性金属膜を陽極として使用し、陰極としては白金電極等を用いることが好ましい。また、陽極に印加する電圧は、導電性金属膜の膜厚に応じて30～700Vとすることが好ましく、このとき、1Vあたり5～30オングストロームの厚さに亘って前記の導電性金属膜が酸化される。中性電解質溶液中で前記の導電性金属膜を陽極酸化することにより、多孔質ではなく緻密な酸化物膜を形成することが可能になる。

この後、上記のレジストパターンを所定の剥離液を用いて剥離して、目的とす

る平坦化層を得る。

上述した透明電極および平坦化層を有している本発明の有機EL素子IIにおいては、透明電極の面抵抗が $12\Omega/\square$ 以下と小さいので、前述した本発明の有機EL素子Iと同様に、当該有機EL素子IIを用いることにより電圧降下による表示性能の低下、消費電力の増大およびRC時定数の増大をそれぞれ抑制しつつ有機EL表示パネルを得ることが可能になる。

また、前記の透明電極の表面平坦度は、当該透明電極の材料となる透明導電膜を製膜した時点で既に 20nm 以下であるので、所望の表面平坦度を有する透明電極を得るために研磨等の処理を施す必要が無く、その作製は容易である。そして、この透明電極を有している本発明の有機EL素子IIにおいては、前述した本発明の有機EL素子Iと同様に局所的凹凸が小さく、有機単層部もしくは有機多層部を形成している有機化合物の結晶化が促進されるということも少ないので、輝度ムラ、発光安定性の低下および発光性の低下がそれぞれ生じにくい。

さらに、前記の透明電極の上面と基板表面との段差が平坦化層によって緩和されている本発明の有機EL素子IIにおいては、前述した本発明の有機EL素子Iと同様に透明電極上に形成されている有機単層部または有機多層部に段差切れが生じにくく、前記の有機単層部上または有機多層部上に形成されている対向電極にも段差切れが生じにくい。

これらの結果として、本発明の有機EL素子IIを用いて有機EL表示パネルを作製した場合には、表示品質の高い有機EL表示パネルを容易に得ることが可能になる。

上述した特性を有する本発明の有機EL素子IIは、有機EL表示パネルの画素として好適である他、面光源としても好適である。

本発明の有機EL素子Iおよび有機EL素子IIは、上述のようにして形成することができる透明電極を備えたものであればよく、その他の層構成については有機EL素子として機能するものであれば特に限定されるものではない。

有機EL素子の層構成としては種々のものがあり、透明基板上に形成され、かつ、当該透明基板を光取り出し面とするタイプの有機EL素子の層構成の具体例としては、例えば、前記の透明基板上の積層順が下記(1)～(4)のものが挙

げられる。

- (1) 陽極（透明電極）／発光層／陰極（対向電極）
- (2) 陽極（透明電極）／正孔注入層／発光層／陰極（対向電極）
- (3) 陽極（透明電極）／発光層／電子注入層／陰極（対向電極）
- (4) 陽極（透明電極）／正孔注入層／発光層／電子注入層／陰極（対向電極）

上記（１）のタイプの有機ＥＬ素子では発光層が本発明でいう有機単層部に相当し、上記（２）のタイプの有機ＥＬ素子では正孔注入層および発光層が本発明でいう有機多層部に相当し、上記（３）のタイプの有機ＥＬ素子では発光層および電子注入層が本発明でいう有機多層部に相当し、上記（４）のタイプの有機ＥＬ素子では正孔注入層、発光層および電子注入層が本発明でいう有機多層部に相当する。

発光層は、通常１種または複数種の有機発光材料によって形成されるが、有機発光材料と電子注入材料および／または正孔注入材料との混合物や、当該混合物もしくは有機発光材料を分散させた高分子材料等によって形成される場合もある。また、上述した層構成の有機ＥＬ素子の外周に、当該有機ＥＬ素子を覆うようにして、有機ＥＬ素子への水分や酸素の侵入を防止するための封止層が設けられる場合もある。

本発明の有機ＥＬ素子では、透明電極（陽極）以外の層の材料については特に限定されるものではなく、種々の材料を用いることができる。基板も含めて、透明電極以外の各層について以下説明する。

（Ａ）基板

基板を光取り出し面とする場合には、前述したように透明基板を用いる。この透明基板は、発光層からの発光（ＥＬ光）に対して高い透過性（概ね８０％以上）を与える物質からなっていればよく、その具体例としてはアルカリガラス、無アルカリガス等の透明ガラスや、ポリエチレンテレフタレート、ポリカーボネート、ポリエーテルスルホン、ポリエーテルエーテルケトン、ポリフッ化ビニル、ポリアクリレート、ポリプロピレン、ポリエチレン、非晶質ポリオレフィン、フッ素系樹脂等の透明樹脂（熱可塑性樹脂または熱硬化性樹脂）、または石英等からなる板状物やシート状物、あるいはフィルム状物が挙げられる。

透明樹脂からなる基板を用いる場合には、有機EL素子への酸素や水分の侵入を防止するために、その表面に必要な応じて予め防湿性無機酸化物膜（例えばケイ素酸化物、アルミニウム酸化物、チタン酸化物、ジルコニウム酸化物、イットリウム酸化物、イッテルビウム酸化物、マグネシウム酸化物、タンタル酸化物、セリウム酸化物またはハフニウム酸化物からなる膜厚5～200nmの膜）を形成してもよい。

上記の防湿性無機酸化物膜は、透明樹脂からなる基板に設ける他、透明樹脂以外の物質からなる基板に設けてもよい。透明樹脂以外の物質からなる基板に上記の防湿性無機酸化物膜を設けた場合、当該防湿性無機酸化物膜は透明電極用のアンダーコート層として利用することもできる。

どのような透明基板を用いるかは、目的とする有機EL素子の用途等に応じて適宜選択可能である。

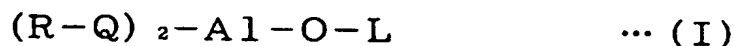
一方、基板を光取り出し面としない場合（例えば側面発光型の有機EL素子を得る場合）には、上述した透明基板以外のものについても基板として利用することができる。

(B) 発光層

発光層の材料として使用する有機発光材料は、(a) 電荷の注入機能、すなわち、電界印加時に陽極あるいは正孔注入層から正孔を注入することができ、陰極あるいは電子注入層から電子を注入することができる機能、(b) 輸送機能、すなわち、注入された正孔および電子を電界の力で移動させる機能、および(c) 発光機能、すなわち、電子と正孔の再結合の場を提供し、これらを発光につなげる機能、の3つの機能を併せもつものであればよいが、上記(a)～(c)の各機能それぞれについて十分な性能を併せもつことは必ずしも必要ではなく、例えば正孔の注入輸送性が電子の注入輸送性よりも大きく優れているものの中にも有機発光材料として好適なものがある。

有機発光材料としては、例えばベンゾチアゾール系、ベンゾイミダゾール系、ベンゾオキサゾール系等の蛍光増白剤や、スチリルベンゼン系化合物、1,2-フタロペリノン、1,4-ジフェニル-1,3-ブタジエン、1,1,4,4-テトラフェニル-1,3-ブタジエン、ナフタルイミド誘導体、ペリレン誘導体、

オキサジアゾール誘導体、アルダジン誘導体、ピラジリン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、ピロロピロール誘導体、スチリルアミン誘導体、クマリン系化合物、国際公開公報WO 90/13148やAppl.Phys.Lett., vol 58, 18, P1982 (1991) に記載されているような高分子化合物、芳香族ジメチリデン系化合物、下記一般式 (I)



(式中、Lはフェニル部分を含んでなる炭素数6～24の炭化水素を表し、O-Lはフェノラート配位子を表し、Qは置換8-キノリノラート配位子を表し、Rはアルミニウム原子に置換8-キノリノラート配位子が2個を上回って結合するのを立体的に妨害するように選ばれた8-キノリノラート環置換基を表す。)

で表される化合物等も、有機発光材料として用いることができる。

その他、上述した有機発光材料をホストとし、当該ホストに青色から緑色までの強い蛍光色素、例えばクマリン系あるいは前記ホストと同様の蛍光色素をドーブした化合物も、有機発光材料として好適である。前記化合物の材料であるホストの具体例としては、ジスチリルアリーレン骨格の有機発光材料（特に好ましくは例えば4, 4'-ビス(2, 2-ジフェニルビニル)ビフェニル)が挙げられ、前記化合物の材料であるドバントの具体例としては、ジフェニルアミノビニルアリーレン（特に好ましくは例えばN, N-ジフェニルアミノビフェニルベンゼン)や4, 4'-ビス[2-[4-(N, N-ジ-p-トリル)フェニル]ビニル]ビフェニル)が挙げられる。

上述した有機発光材料を用いて発光層を形成する方法としては、例えば蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法等の公知の方法を適用することができるが、スパッタリング法以外の方法を適用することが好ましい。さらには、樹脂等の結着剤と有機発光材料とを溶剤に溶かして溶液とした後、これをスピンコート法等により薄膜化することによっても、発光層を形成することができる。

このようにして形成される発光層の膜厚については特に制限はなく、状況に応じて適宜選択することができるが、通常5 nm～5 μmの範囲が好ましい。

(C) 正孔注入層

必要に応じて設けられる正孔注入層の材料（以下「正孔注入材料」という。）は、正孔の注入性あるいは電子の障壁性を有しているものであればよく、例えば、従来より電子感光体の正孔注入材料として用いられているものを適宜選択して用いることができ、正孔の移動度が $10^{-5} \text{ cm}^2 / \text{V} \cdot \text{s}$ （電界強度 $10^4 \sim 10^5 \text{ V/cm}$ ）以上であるものが好ましい。正孔注入材料は、有機物および無機物のどちらでもよい。

具体例としては、トリアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、イミダゾール誘導体、ボリアリールアルカン誘導体、ピラゾリン誘導体、ピラゾロン誘導体、フェニレンジアミン誘導体、アリールアミン誘導体、アミノ置換カルコン誘導体、オキサゾール誘導体、スチリルアントラセン誘導体、フルオレノン誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、シラザン誘導体、ポリシラン、アニリン系共重合体、導電性高分子オリゴマー（特にチオフェンオリゴマー）、ポルフィリン化合物、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン化合物、有機発光材料として示した前述の芳香族ジメチリディン系化合物、p型-Siやp型SiC等の無機半導体等を挙げることができる。

正孔注入材料としては、ポルフィリン化合物、芳香族第三級アミン化合物またはスチリルアミン化合物を用いることが好ましく、特に芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。

正孔注入層は、上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる複層構造であってもよい。複層構造の正孔注入層を形成する場合、発光層と接することになる層は、正孔輸送性を有し、かつ、発光層と接しても非発光性の欠陥を生成しない化合物からなる層（以下、この層を「正孔輸送層」という。）とすることが好ましい。「非発光性の欠陥」とは、発光層と正孔輸送層とが相互作用して励起状態を消失させるようなものであり、例えばエキサイプレックスやCT（電荷移動錯体）等がある。正孔輸送層の材料としては、上述した正孔注入材料の中から有機発光材料と接しても非発光性の欠陥を生成しない化合物を選択して用いる。

正孔注入層（正孔輸送層を含む。）は、上述した正孔注入材料（正孔輸送層の

材料を含む。)を、例えば真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法等の公知の方法により薄膜化することにより形成することができる。正孔注入層全体としての膜厚は特に制限されないが、通常は5 nm～5 μmである。

(D) 電子注入層

必要に応じて設けられる電子注入層の材料(以下「電子注入材料」という。)は、陰極から注入された電子を発光層に伝達する機能を有しているものであればよい。一般には、電子親和力が有機発光材料の電子親和力に比して大きく陰極の仕事関数(陰極が多成分の場合には最小のもの)に比して小さいものが望ましい。ただし、エネルギーレベルの差が極端に大きいところは、そこに大きな電子注入障壁が存在することになり、好ましくない。電子注入材料の電子親和力は、陰極の仕事関数あるいは有機発光材料の電子親和力と同程度の大きさであることが好ましい。電子注入材料は、有機物および無機物のどちらでもよい。

具体例としては、ニトロ置換フルオレノン誘導体、アントラキノジメタン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、ナフタレンペリレン等の複素環テトラカルボン酸無水物、カルボジイミド、フレオレニリデンメタン誘導体、アントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体、特開昭59-194393号公報において発光層の材料として開示されている一連の電子伝達性化合物、オキサジアゾール環の酸素原子がイオウ原子に置換したチアゾール誘導体、電子吸引基として知られているキノキサリン環を有したキノキサリン誘導体、8-キノリノール誘導体の金属錯体、メタルフリーもしくはメタルフタロシアニンまたはこれらの末端がアルキル基、スルホン基等で置換されているもの、有機発光材料として示した前述のジスチリルピラジン誘導体、n型-Siやn型-SiC等の無機半導体等が挙げられる。

電子注入層は、上述した材料の1種または2種以上からなる一層構造であってもよいし、同一組成または異種組成の複数層からなる複層構造であってもよい。電子注入層は、上述した電子注入材料を、例えば真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法等の公知の方法により薄膜化することにより形成することができる。電子注入層としての膜厚は特に制限されないが、通常は5 nm～5 μmである。

(E) 陰極（対向電極）

陰極（対向電極）材料としては仕事関数の小さい（例えば4 eV以下）金属、合金、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物等が好ましく用いられる。具体例としてはナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウムと銀との合金または混合金属、マグネシウム-銅混合物、アルミニウム、Al/Al₂O₃、Al-Li合金、インジウムやイッテルビウム等の希土類金属等が挙げられる。

陰極（対向電極）の膜厚は陰極材料にもよるが、通常10 nm～1 μmの範囲内で適宜選択可能であり、その面抵抗は数百Ω/□以下が好ましい。なお、陰極（対向電極）材料を選択する際に基準とする仕事関数の大きさは4 eVに限定されるものではない。

以上説明したように、本発明の有機EL素子Iおよび有機EL素子IIにおいては、透明電極以外の各層については基板も含めて種々の物質を利用することができ、その層構成も種々の構成とすることができる。また、透明電極、有機単層部もしくは有機多層部および対向電極は、前述したように種々の方法によって形成することができるが、各層の形成にあたって真空蒸着法を用いれば、この真空蒸着法だけによって有機EL素子を形成することができるので、設備の簡略化や生産時間の短縮を図るうえで有利である。

なお、本発明の有機EL素子Iおよび有機EL素子IIは、従来の有機EL素子と同様に、素子への水分や酸素の侵入を防止するための封止層を有していてもよい。

封止層の材料の具体例としては、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種のコモノマーを含むモノマー混合物を共重合させて得られる共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリユリア、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレンとジクロロジフルオロエチレンとの共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質および吸水率0.1%以下の防湿性物質、In, Sn, Pb, Au, Cu, Ag, Al, Ti, Ni等の金属、MgO, SiO, SiO₂, A

I_2O_3 , GeO , NiO , CaO , BaO , Fe_2O_3 , Y_2O_3 , TiO_2 等の金属酸化物、 MgF_2 , LiF , AlF_3 , CaF_2 等の金属フッ化物、パーフルオロアルカン、パーフルオロアミン、パーフルオロポリエーテル等の液状フッ素化炭素および当該液状フッ素化炭素に水分や酸素を吸着する吸着剤を分散させたもの等が挙げられる。

封止層の形成にあたっては真空蒸着法、スピンコート法、スパッタリング法、キャスト法、MBE（分子線エピタキシー）法、クラスターイオンビーム蒸着法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法（高周波励起イオンプレーティング法）、反応性スパッタリング法、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、ガスソースCVD法等を適宜適用することができる。封止層の材料として液状フッ素化炭素や当該液状フッ素化炭素に水分や酸素を吸着する吸着剤を分散させたものを用いる場合には、基板上に形成されている有機EL素子（既に別の封止層があってもよい。）の外側に、当該有機EL素子との間に空隙を形成しつつ前記の基板と共同して有機EL素子を覆うハウジング材を設け、前記の基板と前記のハウジング材とによって形成された空間に前記の液状フッ素化炭素や当該液状フッ素化炭素に水分や酸素を吸着する吸着剤を分散させたものを充填することによって封止層を形成することが好ましい。前記のハウジング材としては、吸水率の小さいガラスまたはポリマー（例えば三フッ化塩化エチレン）からなるものが好適に用いられる。ハウジング材を使用する場合には、上述した封止層を設けずに当該ハウジング材のみを設けてもよいし、ハウジング材を設けた後に、当該ハウジング材と前記の基板とによって形成された空間に酸素や水を吸着する吸着材の層を設けるか当該吸着材からなる粒子を分散させてもよい。

次に、本発明の有機EL表示パネルについて説明する。

本発明の有機ELパネルは、前述したように、上述した本発明の有機EL素子Iまたは有機EL素子IIからなる複数の画素が同一平面上に二次元配列されていることを特徴とするものである。ここで、二次元配列の仕様は特に限定されるものではなく、目的とする有機EL表示パネルの仕様（X-Yマトリックス型やアクティブマトリックス型等）に応じて適宜選択可能である。

X-Yマトリックス型の有機EL表示パネルでは、例えば、基板上に透明電極

(陽極)ラインがストライプ状に所望本数平行に設けられ、これらの透明電極ラインを覆うようにして有機単層部または有機多層部が設けられ、この有機単層部上または有機多層部上に、前記の透明電極ラインと直交する向きに陰極(対向電極)ラインがストライプ状に所望本数平行に設けられる。その結果として、透明電極ラインと陰極(対向電極)ラインとの平面視上の交差部に画素、すなわち有機EL素子が形成される。この場合、前記の透明電極ラインのうちで少なくとも画素(有機EL素子)となる部分の側面がテーパ状を呈するか、またはその部分の側面に隣接して平坦化層が形成される。

また、アクティブマトリックス型の有機EL表示パネルでは、例えば、平面視上の形状が矩形、方形等を呈する透明電極が所定間隔で配列され、これらの透明電極個々の上に有機単層部または有機多層部が設けられ、これらの有機単層部上または有機多層部上に、全ての有機EL素子についての共通電極としての陰極(対向電極)が平膜状に設けられる。その結果として、透明電極と陰極(対向電極)との平面視上の交差部に画素、すなわち有機EL素子が形成される。この場合、前記の透明電極の側面がテーパ状を呈するか、またはその側面に隣接して平坦化層が形成される。

有機EL表示パネルを構成している個々の有機EL素子は、本発明の有機EL素子Iであってもよいし、本発明の有機EL素子IIであってもよい。一つの有機EL表示パネル中に本発明の有機EL素子Iおよび有機EL素子IIが混在していてもよいが、実用上は、本発明の有機EL素子Iまたは有機EL素子IIのいずれか一方のみを使用することが好ましい。

個々の有機EL素子の発光色は、同一であってもよいし異なってもよい。有機EL素子の発光色は有機発光材料の種類に応じて異なってくるので、個々の有機EL素子に使用する有機発光材料の種類は、目的とする有機EL表示パネルの用途等に応じて適宜選択される。どのような発光色の有機EL素子をどのように配列するかについても、目的とする有機EL表示パネルの用途等に応じて適宜選択可能である。

本発明の有機EL表示パネルは、前述した本発明の有機EL素子Iまたは有機EL素子IIからなる複数の画素を同一平面上に二次元配列したものであるので、

電圧降下による表示性能の低下、消費電力の増大およびRC時定数の増大をそれぞれ抑制しつつ表示品質の高いものを容易に得ることが可能な有機EL表示パネルである。

以下、本発明の実施例について説明するが、本発明は下記の実施例に限定されるものではない。

実施例 1

(1) 透明電極の作製

インジウム(In)の原子比 $In/(In+Zn)$ が0.83であるIn-Zn-O系酸化物の焼結体をスパッタリングターゲットとして用いたDCマグネトロンスパッタリング法によって、 $75 \times 75 \times 1.1$ mmのサイズのガラス基板の片面に厚さ300 nmのIn-Zn-O系非晶質酸化物膜(Inの原子比 $In/(In+Zn) = 0.8$)を製膜した。このときのスパッタリングは、スパッタリング雰囲気アルゴンガスと酸素ガスとの混合ガス($Ar : O_2 = 1000 : 2.8$ (体積比))とし、スパッタリング時の真空度を0.2 Paとし、DCスパッタ出力を $2 W/cm^2$ として行った。上記の非晶質酸化物膜の面抵抗を測定したところ、 $10 \Omega/\square$ であった。

次に、12% HBr水溶液をエッチャントとして用いたウェットエッチングによって、上記の非晶質酸化物膜を幅 $110 \mu m$ 、長さ37.5 mm、ピッチ $120 \mu m$ のストライプ状に2列に亘って加工して、所定本数の透明電極ライン(透明電極Iの1つ)を得た。1列中の透明電極ラインの本数は360本であり、列同士間においては、各透明電極ラインはその長手方向を一致させて直列に配列されている。

上記の透明電極ラインのいずれにおいても、その側面(長手方向に延びている側面)はテーパ状を呈しており、当該側面とガラス基板表面とのなす角を電子顕微鏡で観測したところ 30° であった。また、透明電極ラインの表面平坦度を走査型原子間力顕微鏡(AFM)を用いて求めたところ $10 nm$ であり、極めて平滑であった。そして、これらの透明電極ラインの電気抵抗は、それぞれ3.6 K Ω 程度であった。

(2) 有機EL表示パネルIの作製

上記(1)で透明電極ラインを形成した後のガラス基板(以下「透明電極ライン付きガラス基板」という。)について、イソプロピルアルコール中での超音波洗浄を5分間行った後、UV/オゾン洗浄を30分間行った。

洗浄後の透明電極ライン付きガラス基板を真空蒸着装置の基板ホルダーに装着し、まず、透明電極ラインが形成されている側の面上に、前記透明電極ラインを覆うようにして膜厚80nmの4,4'-ビス[N,N-ジ(3-メチルフェニル)アミノ]-4''-フェニルトリフェニルアミン膜(以下「TPD74膜」と略記する。)を製膜した。このTPD74膜は、第1の正孔注入層として機能する。TPD74膜の製膜に続けて、当該TPD74膜上に膜厚20nmの4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル膜(以下「NPD膜」と略記する。)を製膜した。このNPD膜は、第2の正孔注入層(正孔輸送層)として機能する。さらに、NPD膜の製膜に続けて、当該NPD膜上に膜厚40nmの4,4'-ビス(2,2-ジフェニルビニル)ビフェニル膜(以下「DPVBi膜」と略記する。)を製膜した。このDPVBi膜は、青色発光層として機能する。そして、DPVBi膜の製膜に続けて、当該DPVBi膜上に膜厚20nmのトリス(8-キノリノール)アルミニウム膜(以下「Alq膜」と略記する。)を製膜した。このAlq膜は、電子注入層として機能する。

この後、上記のAlq膜まで製膜した透明電極ライン付きガラス基板の下方(蒸着源側)に、開口幅200 μ mの開口ラインを300 μ mピッチで所定本数有しているマスクを装置し、マグネシウム(Mg)と銀(Ag)とを二元蒸着させて、ストライプ状を呈する膜厚200nmのMg:Ag合金膜を前述した透明電極ラインと平面視上直交するようにして、前記のAlq膜上に所定本数製膜した。このとき、Mgの蒸着レートは2nm/秒とし、Agの蒸着レートは0.1nm/秒とした。各Mg:Ag合金膜は、陰極(対向電極)ラインとして機能する。

上記の陰極(対向電極)ラインまで形成することにより、有機EL表示パネルが得られた。この有機EL表示パネルは本発明の有機EL表示パネルIの1つであり、有機EL素子Iからなる画素がX-Yマトリックス状に二次元配列されて

いるものである。なお、前記の有機EL素子Iは、透明電極ラインと陰極（対向電極）ラインとの平面視上の交差部に形成されており、その層構成は、ガラス基板側から順に透明電極（陽極； In-Zn-O 系非晶質酸化物膜）、第1の正孔注入層（TPD74膜）、第2の正孔注入層（正孔輸送層；NPD膜）、発光層（DPVB膜）、電子注入層（Alq膜）、陰極（対向電極； Mg:Ag 合金膜）となっている。この有機EL素子においては、第1の正孔注入層（TPD74膜）、第2の正孔注入層（正孔輸送層；NPD膜）、発光層（DPVB膜）および電子注入層（Alq膜）が有機多層部に相当する。

（3）有機EL表示パネルの駆動試験

上記（2）で作製した有機EL表示パネルに駆動装置を接続し、各陰極ラインをそれぞれ走査電極として用い、各透明電極ラインをそれぞれ信号電極として用いて、デューティ比1/120で上下分割駆動させたところ、品質の高い表示が行われた。

すなわち、各画素（有機EL素子）に短絡は生じず、短絡によって生じるクロストークも無かった。また、透明電極ラインの電気抵抗が3.6K Ω 程度と小さい（面抵抗が10 Ω/\square と小さい）ので電圧降下も小さく、各画素は均一に発光した。さらに、有機多層部や陰極ラインの段差切れに起因して起こる画像の点欠陥や線欠陥も無かった。そして、駆動中の画素を実体顕微鏡で観察したところ、無発光点は僅少であった。無発光点が僅少であるのは、透明電極ラインの表面平坦度が10nmと小さく、その表面が極めて平滑であることに起因しているものと推察される。

実施例2

（1）透明電極の作製

実施例1（1）と同様にして、厚さ300nmの In-Zn-O 系非晶質酸化物膜（ In の原子比 $\text{In}/(\text{In}+\text{Zn})=0.8$ ）を製膜した。

次に、上記の In-Zn-O 系非晶質酸化物膜上にフォトリソスト膜を形成し、所定の露光用原版を用いての露光および所定の現像液を用いての現像を行って所望形状のレジストパターン形成した後、12% HBr 水溶液をエッチャントとして用いてウェットエッチングを行った。次いで、前記のレジストパターンをそ

のままにした状態で、このレジストパターン上および当該レジストパターンが形成されている側のガラス基板表面上に電子ビーム蒸着法によって膜厚 270 nm のアルミニウム (Al) 膜を製膜した。

この後、前記のレジストパターンを所定の剥離液を用いて剥離して、In-Zn-O系非晶質酸化物膜からなる幅 110 μ m、長さ 37.5 mm の透明電極ラインが 120 μ m ピッチで 2 列に亘って所定本数形成されており、各透明電極ラインの側面に隣接して前記の Al 膜が形成されているガラス基板（以下、このガラス基板を「ガラス基板 A」という。）を得た。このガラス基板 A に形成されている各列中の透明電極ラインの本数は 360 本であり、列同士間においては、各透明電極ラインはその長手方向を一致させて直列に配列されている。

次に、0.1 モル濃度の酒石酸アンモニウム水溶液とエチレングリコールとを 1 : 9 の容量比で混合し、この混合液にアンモニウム水溶液を添加してその pH を 7.0 に調節して、陽極酸化用の中性電解質溶液を得た。そして、この中性電解質溶液に上記のガラス基板 A を浸漬し、当該ガラス基板 A に形成されている前記の Al 膜を陽極として用い、陰極として白金電極を用いて、印加電圧 240 V、電流密度 1 mA/cm²、溶液温度 40℃ の条件で陽極酸化を行って、前記の Al 膜を完全に酸化させた。この陽極酸化によって前記の Al 膜に由来する膜厚 300 nm の酸化アルミニウム膜が前記の透明電極ライン各々の側面に隣接して生成した。当該酸化アルミニウム膜は、平坦化層として機能する。

なお、上記の平坦化層（酸化アルミニウム膜）まで形成したガラス基板（以下、このガラス基板を「ガラス基板 B」という。）に形成されている各透明電極ラインの電気抵抗は 3.8 K Ω であった。

(2) 有機 EL 表示パネル II の作製

上記 (1) で得たガラス基板 B を用いた以外は実施例 1 (2) と同様にして、有機 EL 表示パネルを得た。この有機 EL 表示パネルは本発明の有機 EL 表示パネル II の 1 つであり、有機 EL 素子 II からなる画素が X-Y マトリックス状に二次元配列されているものである。

(3) 有機 EL 表示パネルの駆動試験

上記 (2) で作製した有機 EL 表示パネルに駆動装置を接続し、実施例 1 (3)

）と同様にして駆動させたところ、品質の高い表示が行われた。

すなわち、各画素（有機EL素子）に短絡は生じず、短絡によって生じるクロストークも無かった。また、透明電極ラインの電気抵抗が $3.8\text{ K}\Omega$ と小さい（面抵抗が $10\text{ }\Omega/\square$ と小さい）ので電圧降下も小さく、各画素は均一に発光した。さらに、有機多層部や陰極ラインの段差切れに起因して起こる画像の点欠陥や線欠陥も無かった。そして、駆動中の画素を実体顕微鏡で観察したところ、無発光点は僅少であった。無発光点が僅少であるのは、透明電極ラインの表面平坦度が 17 nm と小さく、その表面が極めて平滑であることに起因しているものと推察される。

実施例 3

（1）透明電極の作製

まず、 $75\times 75\times 1.1\text{ mm}$ のサイズのガラス板の片面にRFマグネトロンスパッタリング法によって厚さ 100 nm の TiO_2 膜を製膜して、前記の TiO_2 膜からなるアンダーコート層を備えた透明基板を得た。 TiO_2 膜を製膜するにあたっては、スパッタリング雰囲気アルゴンガスとし、スパッタリング時の真空度を 0.2 Pa とし、RFスパッタ出力を $2\text{ W}/\text{cm}^2$ とした。

次に、DCマグネトロンスパッタリング法によって、上記の TiO_2 膜上に厚さ 5 nm の Ag 膜を製膜した。このときのスパッタリング雰囲気および真空度は上記の TiO_2 を製膜する際と同じとし、DCスパッタ出力は $1\text{ W}/\text{cm}^2$ とした。

この後、DCマグネトロンスパッタリング法によって、上記の Ag 膜上に厚さ 100 nm の In-Zn-O 系非晶質酸化物膜（ In の原子比 $\text{In}/(\text{In}+\text{Zn})=0.8$ ）を製膜した。このときのスパッタリングは、スパッタリング雰囲気アルゴンガスと酸素ガスとの混合ガス（ $\text{Ar}:\text{O}_2=1000:2.8$ （体積比））とし、スパッタリング時の真空度を 0.2 Pa とし、DCスパッタ出力を $2\text{ W}/\text{cm}^2$ として行った。

上記の Ag 膜および In-Zn-O 系非晶質酸化物膜からなる2層構造の透明導電膜について、その面抵抗および光透過率を測定したところ、面抵抗は $5\text{ }\Omega/\square$ 、波長 $420\sim 650\text{ nm}$ の可視光域での光透過率は70%以上であった。

次に、15% HBr 水溶液をエッチャントとして用いたウエットエッチングによって、上記2層構造の透明導電膜を実施例1(1)におけるのと同様のパターンにパターンニングして、目的とする透明電極ライン(透明電極Iの1つ)を得た(この透明電極ラインまで形成した後のガラス基板を、以下「透明電極ライン付きガラス基板」という。))。

上記の透明電極ラインのいずれにおいても、Ag膜およびIn-Zn-O系非晶質酸化物膜の側面(長手方向に延びている側面)はテーパ状を呈しており、当該側面とガラス基板表面とのなす角を電子顕微鏡で観測したところ30°であった。また、透明電極ラインの表面平坦度を走査型原子間力顕微鏡(AFM)を用いて求めたところ10nmであり、極めて平滑であった。そして、これらの透明電極ラインの電気抵抗は、それぞれ2.0KΩ程度であった。

(2) 有機EL表示パネルIの作製

上記(1)で得た透明電極ライン付きガラス基板を用いた以外は実施例1(2)と同様にして、有機EL表示パネルを得た。

この有機EL表示パネルは本発明の有機EL表示パネルIの1つである。

(3) 有機EL表示パネルの駆動試験

上記(2)で作製した有機EL表示パネルに駆動装置を接続し、実施例1(3)と同様にして駆動させたところ、品質の高い表示が行われた。

すなわち、各画素(有機EL素子)に短絡は生じず、短絡によって生じるクロストークも無かった。また、透明電極ラインの電気抵抗が2.0KΩ程度と小さい(面抵抗が5Ω/□と小さい)ので電圧降下も小さく、各画素は均一に発光した。さらに、有機多層部や陰極ラインの段差切れに起因して起こる画像の点欠陥や線欠陥も無かった。そして、駆動中の画素を実体顕微鏡で観察したところ、無発光点は僅少であった。無発光点が僅少であるのは、透明電極ラインの表面平坦度が10nmと小さく、その表面が極めて平滑であることに起因しているものと推察される。

実施例4

(1) 透明電極の作製

まず、DCマグネトロンスパッタリング法によって、75×75×1.1mm

のサイズのガラス基板の片面に厚さ100nmのITO膜を製膜した。このときのスパッタリングは、スパッタリング雰囲気アルゴンガスと酸素ガスとの混合ガス ($\text{Ar} : \text{O}_2 = 1000 : 2.8$ (体積比)) 雰囲気とし、スパッタリング時の真空度を0.2Paとし、RFスパッタ出力を $2\text{W}/\text{cm}^2$ として行った。

次に、DCマグネトロンスパッタリング法によって、上記のITO膜上に厚さ10nmのAg膜を製膜した。このときのスパッタリング雰囲気および真空度は上記のITO膜を製膜する際と同じとし、DCスパッタ出力は $1\text{W}/\text{cm}^2$ とした。

この後、DCマグネトロンスパッタリング法によって、上記のAg膜上に厚さ100nmのIn-Zn-O系非晶質酸化物膜 (Inの原子比 $\text{In}/(\text{In} + \text{Zn}) = 0.8$) を製膜した。このときのスパッタリング雰囲気、真空度およびDCスパッタ出力は、上記のITO膜を製膜する際と同じとした。

これらのITO膜、Ag膜およびIn-Zn-O系非晶質酸化物膜からなる3層構造の透明導電膜について、その面抵抗および光透過率を測定したところ、面抵抗は $3\Omega/\square$ 、波長420~650nmの可視光域での光透過率は70%以上であった。

次に、15% HBr水溶液をエッチャントとして用いたウエットエッチングによって、上記3層構造の透明導電膜を実施例1(1)におけるのと同様のパターンにパターンニングして、目的とする透明電極ライン (透明電極Iの1つ) を得た (この透明電極ラインまで形成した後のガラス基板を、以下「透明電極ライン付きガラス基板」という。)。

上記の透明電極ラインのいずれにおいても、Ag膜およびIn-Zn-O系非晶質酸化物膜の側面 (長手方向に延びている側面) はそれぞれきれいなテーパー状を呈しており、当該側面とガラス基板表面とのなす角を電子顕微鏡で観測したところ 30° であった。また、ITO膜の側面 (長手方向に延びている側面) もテーパー状を呈していた。

当該透明電極ラインの表面平坦度を走査型原子間力顕微鏡 (AFM) を用いて求めたところ10nmであり、極めて平滑であった。そして、これらの透明電極ラインの電気抵抗は、それぞれ1.2K Ω 程度であった。

(2) 有機EL表示パネルIの作製

上記(1)で得た透明電極ライン付きガラス基板を用いた以外は実施例1(2)と同様にして、有機EL表示パネルを得た。

この有機EL表示パネルは本発明の有機EL表示パネルIの1つである。

(3) 有機EL表示パネルの駆動試験

上記(2)で作製した有機EL表示パネルに駆動装置を接続し、実施例1(3)と同様にして駆動させたところ、品質の高い表示が行われた。

すなわち、各画素(有機EL素子)に短絡は生じず、短絡によって生じるクロストークも無かった。また、透明電極ラインの電気抵抗が $1.2\text{ K}\Omega$ と小さい(面抵抗が $3\Omega/\square$ と小さい)ので電圧降下も小さく、各画素は均一に発光した。さらに、有機多層部や陰極ラインの段差切れに起因して起こる画像の点欠陥や線欠陥も無かった。そして、駆動中の画素を実体顕微鏡で観察したところ、無発光点は僅少であった。無発光点が僅少であるのは、透明電極ラインの表面平坦度が 10 nm と小さく、その表面が極めて平滑であることに起因しているものと推察される。

実施例5

(1) 透明電極の作製

まず、ITO膜に代えて厚さ 100 nm の In-Zn-O 系非晶質酸化物膜(In の原子比 $\text{In}/(\text{In}+\text{Zn})=0.8$)を製膜し、かつ、Ag膜の厚さを 10 nm とした以外は実施例4(1)と同様にして3層構造の透明導電膜を得た。なお、ITO膜に代えての In-Zn-O 系非晶質酸化物膜を製膜するにあたっては、スパッタリング雰囲気、真空度およびDCスパッタ出力のいずれについても、実施例4(1)におけるITO膜製膜時の条件と同じにした。

上記の透明導電膜(In-Zn-O 系非晶質酸化物膜、Ag膜および In-Zn-O 系非晶質酸化物膜からなる3層構造のもの)について、その面抵抗および光透過率を測定したところ、面抵抗は $5\Omega/\square$ 、波長 $420\sim 650\text{ nm}$ の可視光域での光透過率は 65% 以上であった。

次に、 $15\%\text{ HBr}$ 水溶液をエッチャントとして用いたウェットエッチングによって、上記3層構造の透明導電膜を実施例1(1)におけるのと同様のパター

ンにパターニングして、目的とする透明電極ライン（透明電極 I の 1 つ）を得た（この透明電極ラインまで形成した後のガラス基板を、以下「透明電極ライン付きガラス基板」という。）。

上記の透明電極ラインのいずれにおいても、Ag 膜および In-Zn-O 系非晶質酸化物膜の側面（長手方向に延びている側面）はそれぞれきれいなテーパ状を呈しており、当該側面とガラス基板表面とのなす角を電子顕微鏡で観測したところ 30° であった。

また、当該透明電極ラインの表面平坦度を走査型原子間力顕微鏡（AFM）を用いて求めたところ 10 nm であり、極めて平滑であった。そして、これらの透明電極ラインの電気抵抗は、それぞれ $2.0\text{ K}\Omega$ 程度であった。

（2）有機 EL 表示パネル I の作製

上記（1）で得た透明電極ライン付きガラス基板を用いた以外は実施例 1（2）と同様にして、有機 EL 表示パネルを得た。

この有機 EL 表示パネルは本発明の有機 EL 表示パネル I の 1 つである。

（3）有機 EL 表示パネルの駆動試験

上記（2）で作製した有機 EL 表示パネルに駆動装置を接続し、実施例 1（3）と同様にして駆動させたところ、品質の高い表示が行われた。

すなわち、各画素（有機 EL 素子）に短絡は生じず、短絡によって生じるクロストークも無かった。また、透明電極ラインの電気抵抗が $2.0\text{ K}\Omega$ 程度と小さい（面抵抗が $5\Omega/\square$ と小さい）ので電圧降下も小さく、各画素は均一に発光した。さらに、有機多層部や陰極ラインの段差切れに起因して起こる画像の点欠陥や線欠陥も無かった。そして、駆動中の画素を実体顕微鏡で観察したところ、無発光点は僅少であった。無発光点が僅少であるのは、透明電極ラインの表面平坦度が 10 nm と小さく、その表面が極めて平滑であることに起因しているものと推察される。

比較例 1

まず、実施例 1（1）における In-Zn-O 系非晶質酸化物膜に代えて、基板温度を 200°C とした電子ビーム蒸着法により膜厚 200 nm の結晶質 ITO 膜を製膜した。この結晶質 ITO 膜の表面平坦度は 60 nm と悪く、結晶質膜で

あることに加えてその表面平坦度も本発明の限定範囲外であった。また、この結晶質ITO膜の面抵抗は $15\ \Omega/\square$ と大きく、面抵抗についても本発明の限定範囲外であった。なお、上記の結晶質ITO膜のグレインサイズは $100\sim 200\text{ nm}$ であった。

次に、上記の結晶質ITO膜を実施例1(1)と同様にしてウエットエッチングして、透明電極ラインを形成した。当該透明電極ラインの側面とガラス基板表面とのなす角は 80° であった。

この後、実施例1(2)と同様にして有機EL表示パネルを作製し、その駆動試験を実施例1(3)と同様にして行ったところ、良好な表示品質を得ることはできなかった。

すなわち、有機EL素子に短絡が生じ、これに伴ってクロストークも生じた。また、各画素(有機EL素子)は比較的均一に発光したが、有機多層部や陰極ラインの段差切れに起因して起こる画像の点欠陥や線欠陥が多数あった。そして、駆動中の画素を実体顕微鏡で観察したところ、無発光点が多数存在していた。

比較例2

まず、実施例1(1)における In-Zn-O 系非晶質酸化物膜に代えて、DCマグネトロンスパッタリング法により膜厚 100 nm の結晶質ITO膜を製膜した。このとき、酸化インジウムと酸化スズとの混合焼結体(In と Sn の原子比は $9:1$)をスパッタリングターゲットして用い、スパッタリング雰囲気は実施例1(1)と同様にし、基板温度は 200°C とした。

上記の結晶質ITO膜の表面平坦度は 20 nm と本発明の限定範囲内であったが、面抵抗が $30\ \Omega/\square$ と大きく、結晶質膜であることに加えてその面抵抗も本発明の限定範囲外であった。

次に、上記の結晶質ITO膜を実施例1(1)と同様にしてウエットエッチングして、透明電極ラインを形成した。当該透明電極ラインの側面とガラス基板表面とのなす角は 80° であった。また、各透明電極ラインの電気抵抗は $10\text{ K}\Omega$ 以上であった。

この後、実施例1(2)と同様にして有機EL表示パネルを作製し、その駆動試験を実施例1(3)と同様にして行ったところ、良好な表示品質を得ることは

できなかった。

すなわち、透明電極ラインの電気抵抗が $10\text{ K}\Omega$ 以上と高いことから電圧降下が大きく、各画素（有機EL素子）の発光は均一ではなかつた。

以上、実施例を挙げて説明したように、本発明の有機EL素子I、有機EL素子II、有機EL表示パネルIまたは有機EL表示パネルIIによれば、電圧降下による表示性能の低下、消費電力の増大およびRC時定数の増大をそれぞれ抑制しつつ、表示品質の高い有機EL表示パネルを容易に提供することが可能になる。

請 求 の 範 囲

1. 基板上に透明電極が形成され、この透明電極上に少なくとも有機発光材料を含有している有機単層部または有機多層部が形成され、この有機単層部上または有機多層部上に対向電極が形成されている有機EL素子において、

前記の透明電極は、非晶質導電性酸化物層を有する面抵抗 $12\ \Omega/\square$ 以下、表面平坦度 $20\ \text{nm}$ 以下のものであると共に側面がテーパ状を呈するものであり、

前記の非晶質導電性酸化物層上に前記の有機単層部または有機多層部が形成されている、

ことを特徴とする有機EL素子。

2. 透明電極が単層の非晶質導電性酸化物層からなる、請求の範囲1に記載の有機EL素子。
3. 非晶質導電性酸化物層が、インジウム (In) , 亜鉛 (Zn) および酸素 (O) を構成元素とする非晶質酸化物からなり、該非晶質酸化物におけるインジウム (In) の原子比 $\text{In}/(\text{In}+\text{Zn})$ が $0.5\sim 0.9$ である、請求の範囲2に記載の有機EL素子。
4. 透明電極が1層の非晶質導電性酸化物層と1層の金属薄膜とからなる2層構造を有し、前記の非晶質導電性酸化物層上に有機単層部または有機多層部が形成されている、請求の範囲1に記載の有機EL素子。
5. 非晶質導電性酸化物層が、インジウム (In) , 亜鉛 (Zn) および酸素 (O) を構成元素とする非晶質酸化物からなり、該非晶質酸化物におけるインジウム (In) の原子比 $\text{In}/(\text{In}+\text{Zn})$ が $0.5\sim 0.9$ である、請求の範囲4に記載の有機EL素子。
6. 透明電極が2層の透明導電層と該2層の透明導電層によって挟持されている1層の金属薄膜とからなる3層構造を有し、前記2層の透明導電層のうちの少なくとも一方が非晶質導電性酸化物層であり、かつ、前記の非晶質導電性酸化物層上に有機単層部または有機多層部が形成されている、請求の範囲1に記載の有機EL素子。

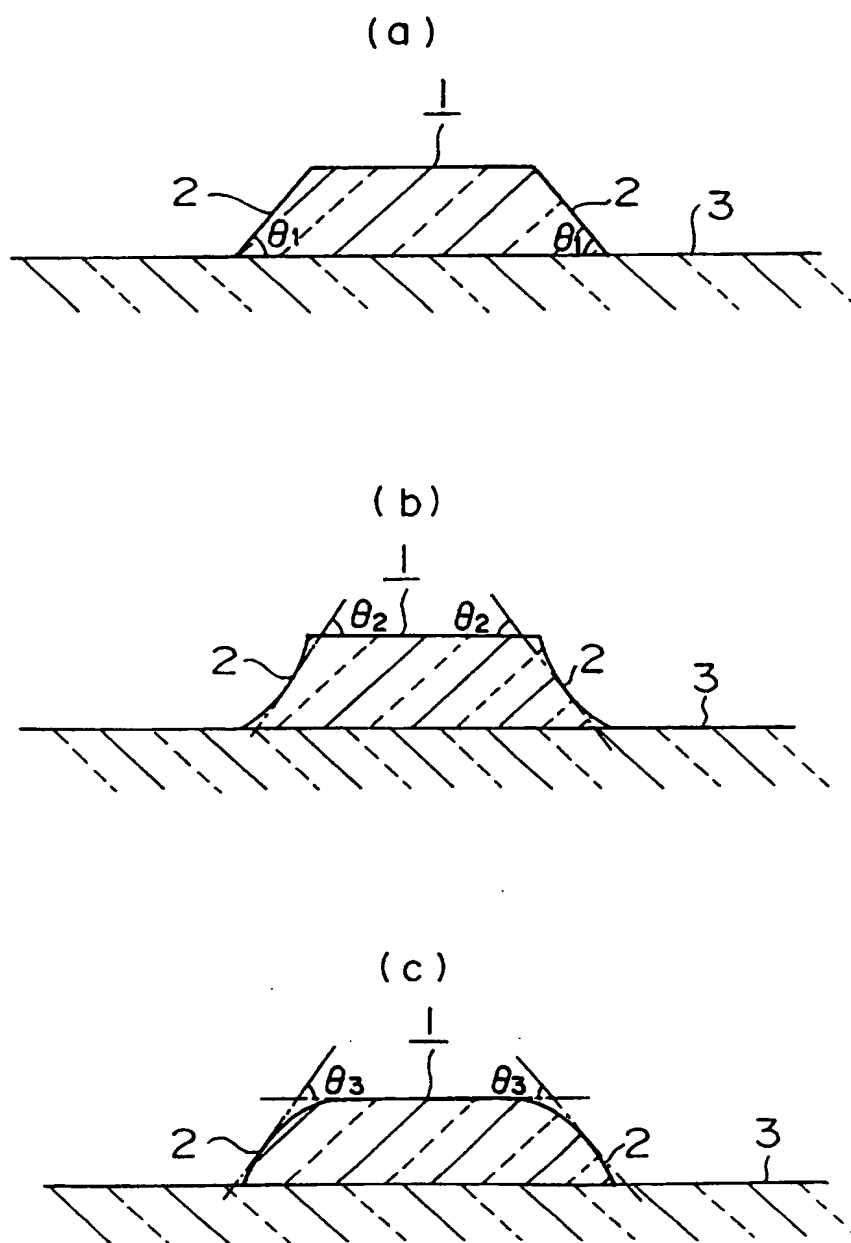
7. 非晶質導電性酸化物層が、インジウム (In) , 亜鉛 (Zn) および酸素 (O) を構成元素とする非晶質酸化物からなり、該非晶質酸化物におけるインジウム (In) の原子比 $In / (In + Zn)$ が 0.5 ~ 0.9 である、請求の範囲 6 に記載の有機 EL 素子。
8. 透明電極の側面と基板表面とのなす角が 60° 以下である、請求の範囲 1 に記載の有機 EL 素子。
9. 基板上に透明電極が形成され、この透明電極上に少なくとも有機発光材料を含有している有機単層部または有機多層部が形成され、この有機単層部上または有機多層部上に対向電極が形成されている有機 EL 素子において、
前記の透明電極は非晶質導電性酸化物層を有する面抵抗 $12 \Omega / \square$ 以下、表面平坦度 20 nm 以下のものであり、前記の非晶質導電性酸化物層上に前記の有機単層部または有機多層部が形成されており、かつ、この透明電極の側面に隣接して該透明電極と前記の基板の表面との間の段差を緩和するための平坦化層が設けられていることを特徴とする有機 EL 素子。
10. 透明電極が単層の非晶質導電性酸化物層からなる、請求の範囲 9 に記載の有機 EL 素子。
11. 非晶質導電性酸化物層が、インジウム (In) , 亜鉛 (Zn) および酸素 (O) を構成元素とする非晶質酸化物からなり、該非晶質酸化物におけるインジウム (In) の原子比 $In / (In + Zn)$ が 0.5 ~ 0.9 である、請求の範囲 10 に記載の有機 EL 素子。
12. 透明電極が 1 層の非晶質導電性酸化物層と 1 層の金属薄膜とからなる 2 層構造を有すると共に該透明電極の側面がテーパ状を呈し、前記の非晶質導電性酸化物層上に有機単層部または有機多層部が形成されている、請求の範囲 9 に記載の有機 EL 素子。
13. 非晶質導電性酸化物層が、インジウム (In) , 亜鉛 (Zn) および酸素 (O) を構成元素とする非晶質酸化物からなり、該非晶質酸化物におけるインジウム (In) の原子比 $In / (In + Zn)$ が 0.5 ~ 0.9 である、請求の範囲 12 に記載の有機 EL 素子。
14. 透明電極が 2 層の透明導電層と該 2 層の透明導電層によって挟持されてい

る1層の金属薄膜とからなる3層構造を有し、前記2層の透明導電層のうちの少なくとも一方が非晶質導電性酸化物層であると共に該透明電極の側面がテーパー状を呈し、かつ、前記の非晶質導電性酸化物層上に有機単層部または有機多層部が形成されている、請求の範囲9に記載の有機EL素子。

15. 非晶質導電性酸化物層が、インジウム(In)、亜鉛(Zn)および酸素(O)を構成元素とする非晶質酸化物からなり、該非晶質酸化物におけるインジウム(In)の原子比 $In / (In + Zn)$ が0.5～0.9である、請求の範囲14に記載の有機EL素子。
16. 請求の範囲1に記載の有機EL素子からなる複数の画素が同一平面上に二次元配列されていることを特徴とする有機EL表示パネル。
17. 請求の範囲2に記載の有機EL素子からなる複数の画素が同一平面上に二次元配列されていることを特徴とする有機EL表示パネル。
18. 請求の範囲4に記載の有機EL素子からなる複数の画素が同一平面上に二次元配列されていることを特徴とする有機EL表示パネル。
19. 請求の範囲6に記載の有機EL素子からなる複数の画素が同一平面上に二次元配列されていることを特徴とする有機EL表示パネル。
20. 請求の範囲9に記載の有機EL素子からなる複数の画素が同一平面上に二次元配列されていることを特徴とする有機EL表示パネル。

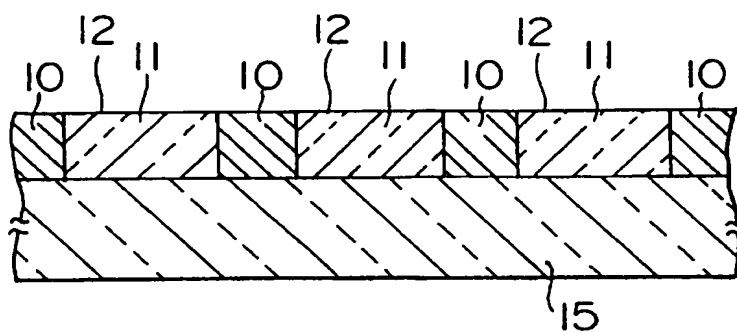
1 / 2

第 1 図

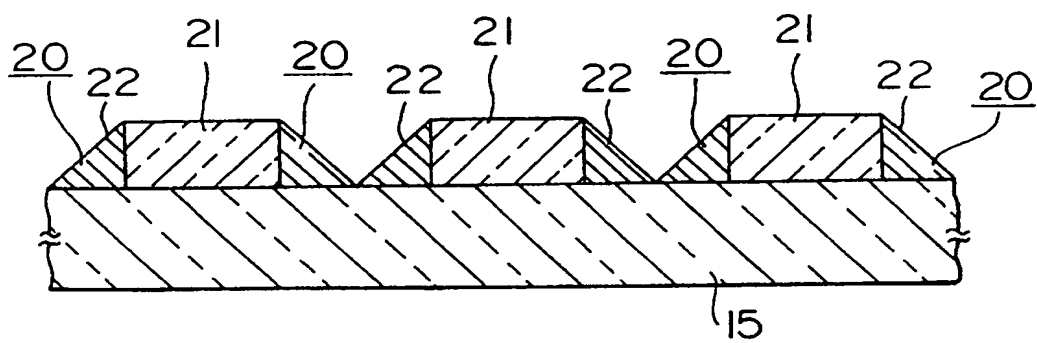


第 2 図

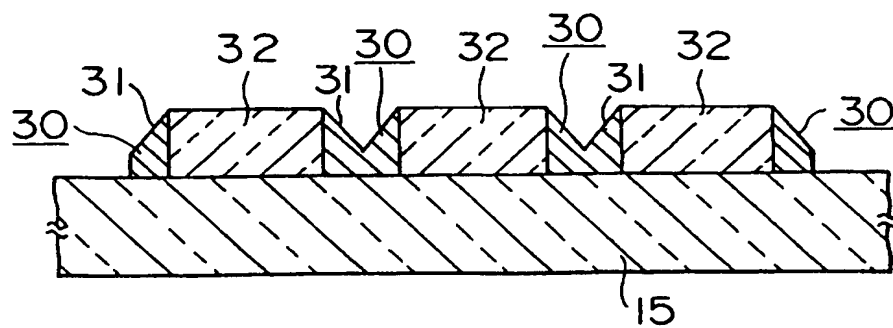
(a)



(b)



(c)



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP97/01826

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int. C1 ⁶ H05B33/26 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int. C1 ⁶ H05B33/26 Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1926 - 1997 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971 - 1997 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994 - 1997 Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP, 7-235219, A (Idemitsu Kosan Co., Ltd.), September 5, 1995 (05. 09. 95) (Family: none)	1-5, 8-13, 16-18, 20
Y	JP, 63-213293, A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), September 6, 1988 (06. 09. 88), Page 2, upper right column, line 7 to page 3, upper left column, line 4; Figs. 1, 2 (Family: none)	1-5, 8, 12-13, 16-18
Y A	JP, 4-254887, A (Pioneer Electric Corp.), September 10, 1992 (10. 09. 92) (Family: none)	4-5, 12-13, 16-18, 20 6, 7, 14, 15, 19
Y	JP, 58-102975, A (Fujitsu Ltd.), June 18, 1983 (18. 06. 83), Page 2, lower left column, line 7 to page 3, upper right column, line 3; Figs. 3 to 8 (Family: none)	9-13, 20
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search June 20, 1997 (20. 06. 97)		Date of mailing of the international search report July 15, 1997 (15. 07. 97)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.		Authorized officer Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. H 05 B 33/26

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. H 05 B 33/26

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1997年
 日本国公開実用新案公報 1971-1997年
 日本国登録実用新案公報 1994-1997年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P、7-235219、A (出光興産株式会社) 5.9月.1995 (05.09.95)、(ファミリーなし)	1-5,8-13,16-18, 20
Y	J P、63-213293、A (松下電器産業株式会社) 6.9月.1988 (06.09.88)、第2頁右上欄第7行~第3頁左上欄第4行、第1、第2図 (ファミリーなし)	1-5,8,12-13, 16-18
Y	J P、4-254887、A (バイオニア株式会社) 10.9月.1992 (10.09.92)、(ファミリーなし)	4-5,12-13,16-18, 20
A		6,7,14,15,19
Y	J P、58-102975、A (富士通株式会社) 18.6月.1983 (18.06.83) 第2頁左下欄第7行~第3頁右上欄第3行、第3図~第8図 (ファミリーなし)	9-13,20

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
 「E」先行文献ではあるが、国際出願日以後に公表されたもの
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

20.06.97

国際調査報告の発送日

15.07.97

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

植原 進

3 K

9 4 3 0

電話番号 03-3581-1101 内線 3333